

Japan Patent Office  
Patent Publication Gazette

Patent Publication No. 06-006769  
Date of Publication: January 26, 1994  
International Class(es): C22C 26/00  
C04B 35/52  
C22C 1/05

(5 pages in all)

---

Title of the Invention: Diamond Sintered Body and Its  
Production  
Patent Appln. No. 62-173386  
Filing Date: July 10, 1987  
Inventor(s): Shoichi KUME  
Haruo YOSHIDA  
Kazutaka SUZUKI  
Yoshio TASAKI  
Applicant(s): Kogyo Gijyutsu Incho

(transliterated, therefore the  
spelling might be incorrect)

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許出願公告番号

特公平6-6769

(24)(44)公告日 平成6年(1994)1月26日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
C 2 2 C 26/00				
C 0 4 B 35/52	3 0 1	B		
C 2 2 C 1/05		P		

発明の数 2 (全 5 頁)

(21)出願番号	特願昭62-173386	(71)出願人	999999999 工業技術院長 東京都千代田区霞が関1丁目3番1号
(22)出願日	昭和62年(1987)7月10日	(72)発明者	衆 正市 愛知県津島市鹿伏兎町字二之割150の2
(65)公開番号	特開平1-17836	(72)発明者	吉田 晴男 愛知県名古屋市北区尾上町1番地の2 尾上団地第5号棟第1406号室
(43)公開日	平成1年(1989)1月20日	(72)発明者	鈴木 一孝 愛知県名古屋市北区中丸町1-1 中丸団地2-203
		(72)発明者	田崎 義男 愛知県名古屋市北区福徳町5-47
		(74)指定代理人	工業技術院名古屋工業技術試験所長
		審査官	影山 秀一

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ダイヤモンド焼結体及びその製造法

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 周期律表第4a、5aまたは6a族の遷移金属、ホウ素、若しくはシリコンが均一にコーティングされたダイヤモンド原料粉体粒子をダイヤモンドの安定領域の超高压高温下で固相で焼結せしめてなる焼結体により構成され、ダイヤモンドと上記コーティング材料の炭化物からなるダイヤモンド焼結体。

【請求項2】 ダイヤモンド原料粉体粒子表面に、物理的蒸気凝縮法により周期律表第4a、5aまたは6a族の遷移金属、ホウ素、若しくはシリコンを均一にコーティングし、これをダイヤモンドの安定領域の超高压高温下で固相で焼結せしめることを特徴とするダイヤモンド焼結体の製造法。

## 【発明の詳細な説明】

[産業上の利用分野]

2

本発明は、新しいダイヤモンド焼結体及びその製造法に関するものである。

## [従来の技術]

ダイヤモンドは、共有結合性に起因する多くの非常に優れた性質を有するが、強い共有結合性に起因して自己拡散係数が非常に小さいために難焼結性であり、体積拡散による焼結は期待できない。また、ダイヤモンドは高压力下でのみ安定で(常温・常圧下では準安定)、圧力が不十分な場合には高温で黒鉛化するという問題も併せもち、助剤無添加で焼結するには、2440K(約2170℃)という非常に高い温度と同時に8.5GPa(85000気圧)の超高压が必要である。これらの条件は、いずれも極限的なものであり、工業的な材料の製造には不適當である。そこで、黒鉛化を防止しつつ焼結体を得るために、従来は、コバルト(Co)、鉄(Fe)、ニッケル(Ni)など、

ダイヤモンドに対して溶媒作用をもつ金属をダイヤモンド粉体に体積で20%程度添加混合して、それを結合材とする液相焼結が、5~6GPa、1600℃以下程度の工業的に比較的容易に実現可能な圧力・温度領域内で行われている。

しかしながら、こうして得られた焼結体は、ダイヤモンド粒子間が主に低融点金属相で結合されているため、高温での金属の軟化に起因する機械的特性の劣化が著しい。また、焼結過程において、ダイヤモンドの溶解一再析出に伴う異常粒成長や溶媒金属のプール形成により、焼結体の強度低下を招く原因にもなる。すなわち、上記溶媒金属を助剤に用いる限り、前述の問題解決にはならない。

#### [発明が解決しようとする問題点]

本発明の目的は、適切な助剤の利用によりこのような問題を解決し、工業的に比較的容易に実現可能な圧力・温度領域内で、黒鉛化を防止しつつ焼結体を形成する場合に、上述した高温での機械的特性の劣化や焼結体の強度低下が生じないようにしたダイヤモンド焼結体及びその製造法を得ることにある。

#### [問題点を解決するための手段]

蒸気目的を達成するための本発明のダイヤモンド焼結体は、周期律表第4a、5aまたは6a族の遷移金属、ホウ素、若しくはシリコンが均一にコーティングされたダイヤモンド原料粉体粒子をダイヤモンドの安定領域の超高压高温下で固相で焼結せしめてなる焼結体により構成され、ダイヤモンドと上記コーティング材料の炭化物からなることを特徴とするものである。

また、本発明のダイヤモンド焼結体製造法は、ダイヤモンド原料粉体粒子表面に、物理的蒸気凝縮法（Physical Vapor Deposition法：以下、PVD法と略記する。）により周期律表第4a、5aまたは6a族の遷移金属、ホウ素、若しくはシリコンを均一にコーティングし、これをダイヤモンドの安定領域の超高压高温下で固相で焼結せしめることを特徴とするものである。

本発明についてさらに詳細に説明すると、本発明に係るダイヤモンド焼結体及び製造法においては、まず、前述した従来のダイヤモンド焼結体において用いられている溶媒金属に代えて、周期律表第4a、5aまたは6a族の高融点遷移金属、ホウ素(B)、若しくはシリコン(Si)を用い、それをPVD法でダイヤモンド原料粉体粒子表面に体して均一にコーティングしたうえで、ダイヤモンドの安定領域の超高压高温下で固相で焼結せしめ、これらコーティング材料とダイヤモンドとの固相炭化反応を焼結の助けとするものである。すなわち、上記遷移金属、ホウ素またはシリコンからなるコーティング材料は、それらが焼結過程において固相で炭化することにより、黒鉛化の抑制と焼結促進の効果を併せもち、高温でも機械的特性の低下の少ない新しいダイヤモンド焼結体を得られる。

このダイヤモンド焼結体は、ダイヤモンドと上記遷移金属、ホウ素、またはシリコンの炭化物から成るものである。

ここで特記すべきことは、従来の溶媒金属を用いた液相焼結と異り、固相で焼結するため、ダイヤモンド原料粉体粒子と、遷移金属、ホウ素またはシリコンとの均一混合が重要である。すなわち、遷移金属等の添加物粉体が凝集して塊状でダイヤモンド粉体粒子中に存在したり、偏在したりすると、黒鉛化防止や焼結促進に大きな効果が望めない。そのため、PVD法でダイヤモンド粉体粒子表面全体に均一にコーティングすることは、ダイヤモンド粉体粒子表面の黒鉛化の防止に効果的であるばかりでなく、結合材の効果が顕著に発揮できる点で有効である。この効果は、特に、本発明に特徴的な微量添加において著しい。

このような本発明によれば、例えば、ダイヤモンド原料粉体粒子へのタングステン(W)のスパッタリング蒸着法による添加量が体積で5%（添加重量から換算）で、かつ5.5GPa、1500℃という焼結条件でも、高硬度なダイヤモンド焼結体を得られる。また、体積で0.1%の極微量添加においても添加効果が顕著に認められる。

このように特徴的なダイヤモンド焼結体を製造する場合には、例えば、ダイヤモンド原料粉体の適量を皿にとり、これに周期律表第4a、5aまたは6a族の遷移金属、またはホウ素(B)若しくはシリコン(Si)の適量を、PVD法（例えば、イオン・スパッタリング法など）により均一に被覆添加する。その被覆添加が行われたダイヤモンド原料粉体は、粉状で、若しくは常温において金型などで成形し、超高压装置を用いて高压・高温下で焼結する。超高压装置は、キュービック型、テトラ型、ガードル型、ベルト型など、いずれでも差支えない。

一例として、キュービック型超高压装置による成形について説明すると、まず、ダイヤモンド原料粉体をペレット状に型押成形し、これをジルコニウム(Zr)箔で包み、さらに窒化ホウ素(BN)成形体で囲って、その外側に黒鉛管ヒータを設置する。このヒータは、試料への均熱性を考慮して、ヒータ中央部が凸となる段付構造のものが適しているが、焼結体への均熱性が保たれるものであれば、段付構造でなくてもよい。また、蒸気ヒータの外側には、700℃で3時間加熱処理することによって結晶水を除いたパイロフライライトが、固体圧力媒体として配置される。焼結のための圧力及び温度は、ダイヤモンド安定な領域が望ましいが、溶媒金属を用いないので、安定領域より若干外れた条件でも差支えない。

#### [実施例]

以下に本発明の実施例を比較例と共に示す。

#### 《実施例1》

粒径0~1μmのダイヤモンド原料粉体約0.5grに対し、タングステン(W)をPVD法により体積で0.85%被覆添加した。この粉体を、外径6mm、高さ2mmに型押成形

(3)

特公平6-6769

5

し、これをジルコニウム (Zr) 箔で包み、さらにその外側に窒化ホウ素 (BN) 成形体を配置した圧力媒体に埋込み、200°C、 $10^{-3}$  torrで一昼夜真空乾燥して、水分等の低沸点不純物を除去した。これをキュービック型超高压装置にセットし、先ず、室温で5.5GPaまで昇温し、その後1500°Cに昇温し、30保持後に降温し、圧力を下げた。得られた焼結体の表面をダイヤモンドペーストで研磨し、走査型電子顕微鏡で観察した結果を第1図及び第2図に示している。

第1図及び第2図中の白く見える部分がWを多く含むところであり、X線回折装置によりWCであることを確認している。X線回折の結果、グラフアイトの回折ピークが消失しており、グラフアイトの抑制効果が大いことを確認することができた。

本焼結体をダイヤモンドペーストで研磨後、硬度を測定したところ、Hv(0.5/10)~5200と高硬度であった。

一方、比較例として示す第3図及び第4図は、平均粒径0.89  $\mu$ mのW粉体を体積で0.85%添加して充分湿式で混

6

合し、それを乾燥後、上記実施例の場合と同様の方法で焼結して得た焼結体の組織である。この場合には、充分な混合にもかかわらず、10  $\mu$ m位のW粉体の凝集塊が認められる。また、この焼結体の硬度は、Hv(0.5/10)~3800で、PVD法に比して非常に低かった。

〔発明の効果〕

以上に詳述した本発明のダイヤモンド焼結体及びその製造法によれば、適切な助剤の利用により、工業適に比較的容易に実現可能な圧力・温度領域内で、黒鉛化を防止しつつ焼結体を形成できるばかりでなく、高温での機械的特性の劣化や焼結体の強度低下の生じないダイヤモンド焼結体の製造法を得ることができる。

〔図面の簡単な説明〕

第1図及び第2図は、本発明の焼結体の粒子構造を示す図面代用電子顕微鏡写真（第1図：X250、第2図：X1000）、第3図及び第4図は比較例の焼結体の粒子構造を示す図面代用写真（第3図：X250、第4図：X10000）である。

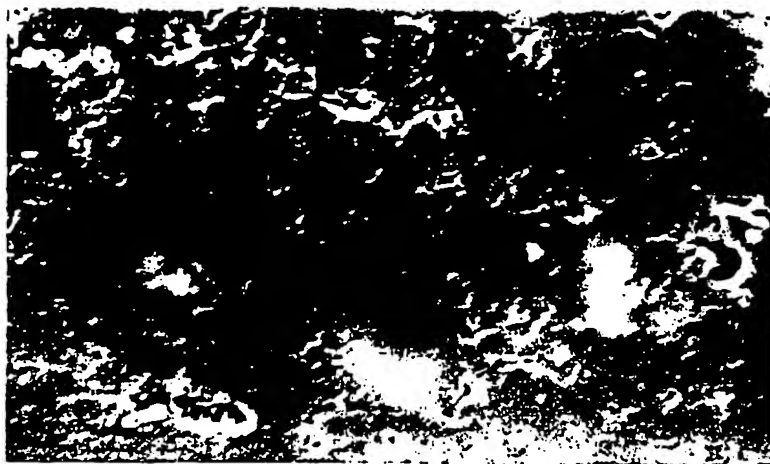
【第1図】



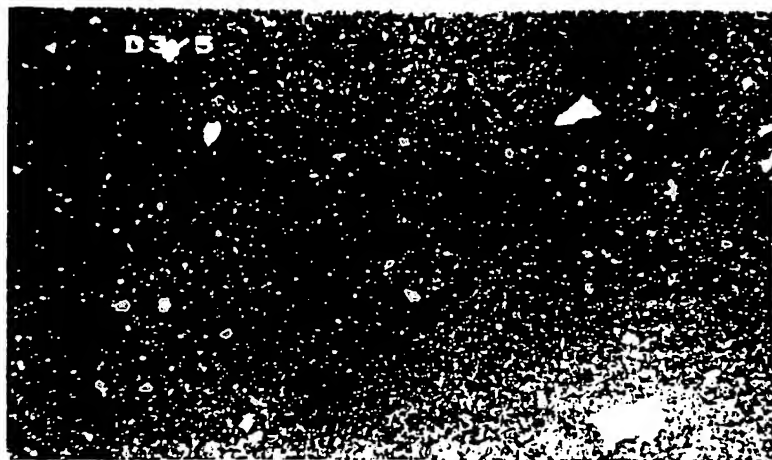
(4)

特公平6-6769

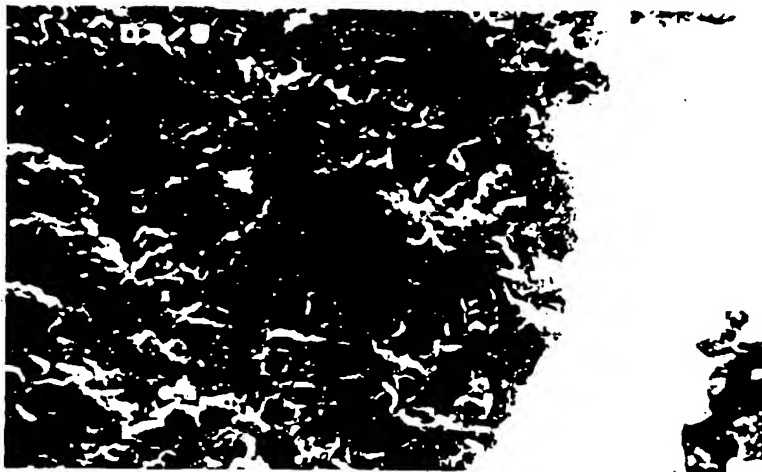
【第2図】



【第3図】



【第4図】



---

フロントページの続き

(72)発明者 生田 史朗  
愛知県小牧市大字小木3949番地の135  
(72)発明者 石川 正光  
愛知県名古屋市中村区太閤2丁目2番10号

(72)発明者 町田 充秀  
愛知県名古屋市守山区大字森孝新田字白山  
350番地の48

## 第3部門(4)

## 正 誤 表

(平成6年6月1日発行)

特 許 公告番号	分 類	識別 記号	個 所	誤	正
平 5- 12423	C22C 38/00	3 0 3	第2頁～第 3頁第一表	別紙1	別紙1
平 6- 4899	C22C 1/09		代理人	代理人 弁理士 長谷川 一 外1名	代理人 弁理士 長谷川 暁 司
平 6- 6769	C22C 26/00		指定代理人	工業技術院名古屋工業技術試 験所長	工業技術院名古屋工業技術研 究所長
平 6- 6789	C23C 16/30		代理人	代理人 弁理士 渡辺 勝徳	代理人 弁理士 平田 忠雄